

DERWENT-ACC-NO: 1993-031015  
DERWENT-WEEK: 199304  
COPYRIGHT 1999 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Dielectrics ceramic compsns. of high density,  
insulation resistance  
etc. - contg. oxide(s) of barium, magnesium, titanium,  
zirconium and rare earth  
metal, and niobium, titanium and vanadium

PATENT-ASSIGNEE: MATSUSHITA ELEC IND CO LTD[MATU]

PRIORITY-DATA: 1991JP-0130993 (June 3, 1991)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE
PAGES	MAIN-IPC	
JP 04357616 A	December 10, 1992	N/A
008	H01B 003/12	

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DESCRIPTOR	APPL-NO
APPL-DATE		
JP 04357616A	N/A	1991JP-0130993
June 3, 1991		

INT-CL (IPC): C04B035/46; H01B003/12 ; H01G004/12

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 04357616A

BASIC-ABSTRACT: Compsn. contains a main constituent of:

$x((\text{BaO})(1-m)(\text{MgO})m).y((\text{TiO}_2)(1-n)(\text{ZrO}_2)n).z(\text{R}(1-t)\text{Met})\text{O}_{3/2}$

(R = at least one of rare earth elements of La, Pr, Nd, and Sm, Me = at least one of rare earth elements except, La, Pr, Nd and Sm, m = 0.01-0.50, n = 0.001-0.200, and t = 0.01-0.20, and x, y, and z are in mol ratio,  $x+y+z = 1$ , and are within the range in mol. ratio encircled with a, b, c, d, e, and f showing specified numerical values), and sec. constituent, of more than one or Nb, Ta, and V.

USE - Dielectrics ceramic compsn. is for fixed capacitors.

Best Available Copy

High dielectrics  
ceramic density, insulation resistance, and dielectric  
breakdown strength.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.1/1

TITLE-TERMS:

DIELECTRIC CERAMIC COMPOSITION HIGH DENSITY INSULATE  
RESISTANCE CONTAIN OXIDE  
BARIUM MAGNESIUM TITANIUM ZIRCONIUM RARE EARTH METAL  
NIOBIUM TITANIUM VANADIUM

ADDL-INDEXING-TERMS:

DIELECTRIC BREAKDOWN STRENGTH

DERWENT-CLASS: L02 L03 V01 X12

CPI-CODES: L02-G07C; L03-B03E;

EPI-CODES: V01-B03A1; X12-E01A;

SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: C1993-014034

Non-CPI Secondary Accession Numbers: N1993-023780

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平4-357616

(43) 公開日 平成4年(1992)12月10日

(51) Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 B 3/12	3 1 3 H	9059-5G		
C 0 4 B 35/46	C	7310-4G		
H 0 1 B 3/12	3 1 2	9059-5G		
	3 2 9	9059-5G		
H 0 1 G 4/12	4 1 5	7135-5E		

審査請求 未請求 請求項の数4(全 8 頁)

(21) 出願番号 特願平3-130993

(22) 出願日 平成3年(1991)6月3日

(71) 出願人 000005821

松下電器産業株式会社

大阪府門真市大字門真1006番地

(72) 発明者 倉光 秀紀

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器

産業株式会社内

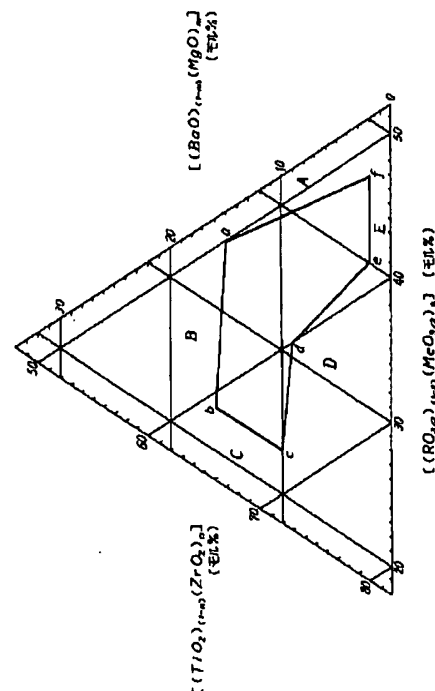
(74) 代理人 弁理士 小鍛冶 明 (外2名)

(54) 【発明の名称】 誘電体磁器組成物

(57) 【要約】

【目的】 結晶粒径が小さく、誘電率、Q、絶縁抵抗、絶縁破壊強度が大きく、静電容量温度係数が小さい誘電体磁器を得ることができる誘電体磁器組成物を提供する。

【構成】 一般式  $x[(BaO)_{(1-x)}(MgO)_x] \cdot y[(TiO_2)_{(1-x)}(ZrO_2)_x] \cdot z(R_{(1-x)}Me)_xO_{3/2}$  で表され、式中RはLa, Pr, Nd, Sm から選ばれる一種以上の希土類元素で、MeはLa, Pr, Nd, Smを除く希土類元素から選ばれる一種以上の希土類元素であり、m, nおよびtの値が  $0.01 \leq m \leq 0.50$ ,  $0.001 \leq n \leq 0.200$  および  $0.01 \leq t \leq 0.20$  なる範囲にある組成を有し、かつ x, y および z はモル比を表し、 $x+y+z=1$  で x, y, z の値が、所定の数値を示す a, b, c, d, e, f で囲まれるモル比の範囲にある組成を主成分とし、ニオブ、タンタル、バナジウムもしくはそれらから選ばれる二種以上を副成分として含有させた組成の構成を有している。



1

【特許請求の範囲】

【請求項1】一般式として $x[(BaO)_{(1-a)}(MgO)_a] \cdot y[(TiO_2)_{(1-b)}(ZrO_2)_b] \cdot z(R_{(1-c)}Me_c)O_{3/2}$ で表され、式中RはLa, Pr, Nd, Smから選ばれる一種以上の希土類元素で、MeはLa, Pr, Nd, Smを除く希土類元素から選ばれる一種以上の希土類元素であり、m, nおよびtの値が $0.01 \leq m \leq 0.50$ 、 $0.001 \leq n \leq 0.200$ および $0.01 \leq t \leq 0.20$ なる範囲にあり、かつx, yおよびzはモル比を表し、 $x+y+z=1$ で

x, y, zの値が、  
aは $x=0.15$ 、 $y=0.50$ 、 $z=0.35$ 、  
bは $x=0.16$ 、 $y=0.61$ 、 $z=0.23$ 、  
cは $x=0.10$ 、 $y=0.67$ 、 $z=0.23$ 、  
dは $x=0.09$ 、 $y=0.60$ 、 $z=0.31$ 、  
eは $x=0.02$ 、 $y=0.58$ 、 $z=0.40$ 、  
fは $x=0.02$ 、 $y=0.52$ 、 $z=0.46$ 、  
で示すa, b, c, d, e, fで囲まれるモル比の範囲にある組成を有する主成分100重量部、およびニオブを $Nb_2O_5$ の形に換算して0.3~5.0重量部からなる誘電体磁器組成物。

【請求項2】ニオブに代えて、タンタルが $Ta_2O_5$ の形に換算して0.1~10.0重量部含有されてなる請求項1記載の誘電体磁器組成物。

【請求項3】ニオブに代えて、バナジウムが $V_2O_5$ の形に換算して0.005~1.000重量部含有されてなる請求項1記載の誘電体磁器組成物。

【請求項4】ニオブに代えて、ニオブ、タンタル、バナジウムから選ばれる2種以上が $Nb_2O_5$ 、 $Ta_2O_5$ 、 $V_2O_5$ の形に換算して合計で0.001~0.010モル部含有されてなる請求項1記載の誘電体磁器組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は電子機器用固定磁器コンデンサの誘電体磁器組成物に関するものである。

【0002】

【従来の技術】以下に従来の誘電体磁器組成物について説明する。誘電体磁器組成物として下記のような系が知られている。

【0003】 $BaO \cdot TiO_2 \cdot Nd_2O_3$ 系 $BaO \cdot TiO_2 \cdot Sm_2O_3$ 系

例えば $0.09BaO \cdot 0.56TiO_2 \cdot 0.35Nd_2O_3$ の組成比からなる誘電体磁器組成物を使用し、誘電体磁器円板を作製し、電気特性および結晶粒径を測定すると、誘電率：67、静電容量温度係数： $N40ppm/^\circ C$ 、 $Q:3000$ 、絶縁抵抗： $8.0 \times 10^{12} \Omega$ 、絶縁破壊強度： $30kv/mm$ および結晶粒径： $1 \sim 5 \mu m$ の値が得られた。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、上記の

2

従来の構成では、絶縁抵抗が小さく、また結晶粒径が大きいため、素体中の気孔率が大きくなるとともに結晶粒子1個当たりにかかる電界強度が大きくなるので、絶縁破壊強度も小さいという問題点を有していた。

【0005】本発明は上記従来の問題点を解決するもので、結晶粒径が小さく、絶縁抵抗、絶縁破壊強度が大きい誘電体磁器を得ることができる誘電体磁器組成物を提供することを目的とする。

【0006】

【課題を解決するための手段】この課題を解決するために本発明の誘電体磁器組成物は、一般式 $x[(BaO)_{(1-a)}(MgO)_a] \cdot y[(TiO_2)_{(1-b)}(ZrO_2)_b] \cdot z(R_{(1-c)}Me_c)O_{3/2}$ で表され、式中RはLa, Pr, Nd, Smから選ばれる一種以上の希土類元素で、MeはLa, Pr, Nd, Smを除く希土類元素から選ばれる一種以上の希土類元素であり、m, nおよびtの値が $0.01 \leq m \leq 0.50$ 、 $0.001 \leq n \leq 0.200$ および $0.01 \leq t \leq 0.20$ なる範囲にある組成を有し、かつx, yおよびzはモル比を表し、 $x+y+z=1$ でx, y, zの値が、

aは $x=0.15$ 、 $y=0.50$ 、 $z=0.35$ 、bは $x=0.16$ 、 $y=0.61$ 、 $z=0.23$ 、cは $x=0.10$ 、 $y=0.67$ 、 $z=0.23$ 、dは $x=0.09$ 、 $y=0.60$ 、 $z=0.31$ 、eは $x=0.02$ 、 $y=0.58$ 、 $z=0.40$ 、fは $x=0.02$ 、 $y=0.52$ 、 $z=0.46$ 、

で示すa, b, c, d, e, fで囲まれるモル比の範囲にある組成を有する主成分100重量部、およびニオブを $Nb_2O_5$ の形に換算して0.3~5.0重量部からなるものである。

【0007】また、ニオブに代えて、タンタルが $Ta_2O_5$ の形に換算して0.1~10.0重量部含有されてなるものである。

【0008】さらには、ニオブに代えて、バナジウムが $V_2O_5$ の形に換算して0.005~1.000重量部含有されてなるものである。

【0009】さらにまた、ニオブに代えて、ニオブ、タンタル、バナジウムから選ばれる2種以上が $Nb_2O_5$ 、 $Ta_2O_5$ 、 $V_2O_5$ の形に換算して合計で0.001~0.010モル部含有されてなるものである。

【0010】

【作用】この構成によって、RをLa, Pr, Nd, Smから選ぶことにより、La, Pr, Nd, Smの順で静電容量温度係数をプラス方向に移行することとなる。

【0011】また、La, Pr, Nd, Smから選ばれる一種以上の希土類元素の一部を、La, Pr, Nd, Smを除く希土類元素から選ばれる一種以上の希土類元素で置換することにより、Qを大きくすることとなる。

【0012】さらに、BaOをMgOで置換することにより、静電容量温度係数をプラス方向に移行させ、絶縁

抵抗を大きくすることとなる。

【0013】そして、 $TiO_2$ を $ZrO_2$ で置換することにより、結晶粒径を小さくし、絶縁破壊強度を大きくすることとなる。

【0014】また、ニオブ、タンタル、バリウムもしくはそれらから選ばれる二種以上を副成分として含有させることにより、絶縁抵抗、絶縁破壊強度を大きくすることとなる。

【0015】

【実施例】以下、本発明の一実施例について説明する。

【0016】（実施例1）出発原料には化学的に高純度の $Nb_2O_5$ 、 $La_2O_3$ 、 $Pr_2O_3$ 、 $Nd_2O_3$ 、 $Sm_2O_3$ 、 $CeO_2$ 、 $Gd_2O_3$ 、 $Dy_2O_3$ 、 $ZrO_2$ 、 $TiO_2$ 、 $MgO$ および $BaCO_3$ 粉末を下記の（表1）に示す組成比になるように秤量し、めうボールを備えたゴム内\*

\*張りのボールミルに純水とともに入れ、湿式混合後、脱水乾燥した。この乾燥粉末を高アルミナ質のルツポに入れ、空气中で $1100^\circ C$ にて2時間仮焼した。この仮焼粉末を、めうボールを備えたゴム内張りのボールミルに純水とともに入れ、湿式粉砕後、脱水乾燥した。この粉砕粉末に、有機バインダーを加え、均質とした後、32メッシュのふるいを通して整粒し、金型と油圧プレスを用いて成形圧力 $1\text{ton}/\text{cm}^2$ で直径15mm、厚み0.4mmに成形した。次いで、こうして得られた成形円板をジルコニア粉末を敷いたアルミナ質のサヤに入れ、空气中にて（表1）に示す焼成温度で2時間焼成し、（表1）の試料番号1～10に示す組成比の誘電体磁器円板を得た。

【0017】

【表1】

試料 番号	主 成 分 (モル比、×100)			置換率 m	置換率 n	置換率 t	主成分中の Rの種類	主成分中の Meの種類	副成分 $Nb_2O_5$ の 含有率(質量%)	焼成温度 ( $^\circ C$ )
	x	y	z							
1	15	50	35	0.01	0.001	0.01	$Sm_{0.1}$ $Nd_{0.9}$	Ce	0.3	1880
2	16	51	33	0.05	0.005	0.02	Nd	Ce	0.5	1270
3	10	57	33	0.05	0.010	0.03	$Sm_{0.1}$ $Nd_{0.9}$	Dy	0.5	1270
4	9	60	31	0.10	0.020	0.05	Sm	Dy	1.0	1270
5	2	58	40	0.10	0.050	0.07	Pr	Gd	1.0	1270
6	2	52	46	0.10	0.050	0.10	La	Gd	1.0	1280
7	12	55	33	0.01	0.050	0.12	$Sm_{0.5}$ $Nd_{0.5}$	$Ce_{0.5}$ $Dy_{0.5}$	1.0	1820
8	11	53	36	0.10	0.100	0.16	Nd	Ce	2.0	1270
9	9	56	35	0.50	0.100	0.18	Nd	Ce	5.0	1270
10	3	54	43	0.01	0.200	0.20	$Pr_{0.5}$ $Sm_{0.5}$	Ce	8.0	1270

【0018】このようにして得られた誘電体磁器円板は、厚みと直径を測定し、誘電率、Q、静電容量温度係数測定用試料は、誘電体磁器円板の両面全体に銀電極を焼き付け、絶縁抵抗、絶縁破壊強度測定用試料は、誘電体磁器円板の外周より内側に1mmの幅で銀電極のない部分を設け、銀電極を焼き付けた。そして、誘電率、Q、静電容量温度係数は、横河・ヒューレット・パッカード（株）社製デジタルLCRメータのモデル4275Aを使用し、測定温度 $20^\circ C$ 、測定電圧1.0Vrms、測定周波数1MHzでの測定より求めた。なお、静電容量温度係数は、 $20^\circ C$ と $85^\circ C$ の静電容量を測定し、次式により求めた。

【0019】

$$TC = (C - C_0) / C_0 \times 1 / 65 \times 10^6$$

TC：静電容量温度係数 (ppm/ $^\circ C$ )

$C_0$ ： $20^\circ C$ での静電容量 (pF)

C： $85^\circ C$ での静電容量 (pF)

また、誘電率は次式より求めた。

$$【0020】 K = 143.8 \times C_0 \times t / D^3$$

30 K：誘電率

$C_0$ ： $20^\circ C$ での静電容量 (pF)

D：誘電体磁器の直径 (mm)

t：誘電体磁器の厚み (mm)

さらに、絶縁抵抗は、横河・ヒューレット・パッカード（株）社製HRメータのモデル4329Aを使用し、測定電圧50V、D.C.、測定時間1分間による測定より求めた。

【0021】そして、絶縁破壊強度は、菊水電子工業（株）製高電圧電源PHS35K-3形を使用し、試料をシリコンオイル中に入れ、昇圧速度50V/secにより求めた絶縁破壊電圧を誘電体厚みで除算し、1mm当たりの絶縁破壊強度とした。

【0022】また、結晶粒径は、倍率400での光学顕微鏡観察より求めた。上記測定結果を試料番号1～10別に（表2）に示す。

【0023】

【表2】

試料 番号	電 気 特 性					結晶粒径 ( $\mu\text{m}$ )
	誘電率	Q	温度係数 (ppm/ $^{\circ}\text{C}$ )	絶縁抵抗 ( $\Omega$ )	絶縁破壊強度 ( $\text{kV}/\text{cm}$ )	
1	43	3500	N231	$4 \times 10^{14}$	41	1~3
2	72	3500	N80	$5 \times 10^{14}$	42	1~3
3	79	4500	N225	$5 \times 10^{14}$	42	1~3
4	55	5500	N34	$5 \times 10^{14}$	44	1~3
5	38	7500	P111	$5 \times 10^{14}$	44	1~3
6	38	7500	P33	$4 \times 10^{14}$	44	1~3
7	65	5500	P2	$4 \times 10^{14}$	44	1~3
8	71	6000	N72	$4 \times 10^{14}$	43	1~3
9	46	6500	P13	$4 \times 10^{14}$	45	1~3
10	41	8500	P68	$4 \times 10^{14}$	43	1~3

【0024】また、図1は本発明にかかる組成物の主成分の組成範囲を示す三元図であり、主成分の組成範囲を限定した理由を図1を参照しながら説明する。すなわち、A領域では焼結が著しく困難である。また、B領域ではQが小さく実用的でなくなる。さらに、C、D領域では静電容量温度係数がマイナス側に大きくなりすぎて実用的でなくなる。そして、E領域では静電容量温度係数がプラス方向に移行するが誘電率が小さく実用的でなくなる。また、RをLa, Pr, Nd, Smから選ぶことにより、La, Pr, Nd, Smの順で誘電率を大きく下げることなく、静電容量温度係数をプラス方向に移行することが可能であり、La, Pr, Nd, Smの1種あるいはそれらの組合せにより静電容量温度係数の調節が可能である。

【0025】さらに、La, Pr, Nd, Smから選ばれる一種以上の希土類元素の一部を、La, Pr, Nd, Smを除く希土類元素から選ばれる一種以上の希土類元素で置換することにより、Qを大きくする効果を有しているが、その置換率tが0.01未満では置換効果はなく、一方0.20を超えると誘電率が小さくなり実用的でなくなる。

【0026】また、BaOをMgOで置換することにより、誘電率、Q、絶縁破壊強度の値を大きく変えることなく、静電容量温度係数をプラス方向に移行させ、絶縁抵抗を大きくする効果を有しているが、その置換率mが

0.01未満では置換効果はなく、一方0.50を超えると誘電率が小さくなり実用的でなくなる。

【0027】さらに、 $\text{TiO}_2$ を $\text{ZrO}_2$ で置換することにより、誘電率、Q、静電容量温度係数、絶縁抵抗の値を大きく変えることなく、結晶粒径を小さくし、絶縁破壊強度を大きくする効果を有しているが、その置換率nが0.001未満では置換効果はなく、一方0.200を超えると誘電率、Q、絶縁抵抗が小さくなる。

【0028】そして、主成分に対し、副成分としての $\text{Nb}_2\text{O}_5$ を含有することにより、絶縁抵抗、絶縁破壊強度を大きくする効果を有しているが、 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ の含有量が主成分100重量部に対し、0.3重量部未満はそれほど絶縁破壊強度が大きくなり、この発明の範囲から除外した。一方、 $\text{Nb}_2\text{O}_5$ の含有量が主成分に対し、5.0重量部を超えるとQ、絶縁抵抗が小さくなり、静電容量温度係数がマイナス側に大きくなり実用的でなくなる。

【0029】(実施例2) 実施例1の原料の中で高純度の $\text{Nb}_2\text{O}_5$ に代えて、高純度の $\text{Ta}_2\text{O}_5$ 粉末を用いて下記の(表3)に示す組成比になるように秤量し、以降の工程を実施例1と同様に処理して(表3)の試料番号11~20に示す組成比の誘電体磁器円板を得、実施例1と同様に処理して特性を測定した結果を試料番号11~20別に(表4)に示す。

【0030】

【表3】

試料 番号	主 成 分 (モル比、×100)			置換率 m	置換率 n	置換率 l	主成分中の Rの種類	主成分中の Meの種類	副成分Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> の 含有率(重量%)	焼成温度 (℃)
	x	y	z							
11	15	50	35	0.01	0.001	0.01	Sm <sub>0.1</sub> Nd <sub>0.9</sub>	Ce	0.1	1330
12	16	61	23	0.05	0.005	0.02	Nd	Ce	1.0	1270
13	10	67	23	0.05	0.010	0.03	Sm <sub>0.1</sub> Nd <sub>0.9</sub>	Dy	1.0	1270
14	9	60	31	0.10	0.020	0.05	Sm	Dy	2.0	1270
15	2	58	40	0.10	0.050	0.07	Pr	Gd	2.0	1270
16	2	52	46	0.10	0.050	0.10	La	Gd	2.0	1280
17	12	55	33	0.01	0.050	0.12	Sm <sub>0.5</sub> Nd <sub>0.5</sub>	Ce <sub>0.5</sub> Dy <sub>0.5</sub>	2.0	1320
18	11	63	26	0.10	0.100	0.15	Nd	Ce	4.0	1270
19	9	56	35	0.50	0.100	0.18	Nd	Ce	10.0	1270
20	3	54	43	0.01	0.200	0.20	Pr <sub>0.5</sub> Sm <sub>0.5</sub>	Ce	6.0	1270

【0031】

【表4】

試料 番号	電 気 特 性					結晶粒径 ( $\mu$ m)
	誘電率	Q	温度係数 (ppm/℃)	絶縁抵抗 ( $\Omega$ )	絶縁破壊強度 (kV/mm)	
11	44	3500	N235	$5 \times 10^{14}$	44	1~3
12	74	3500	N82	$6 \times 10^{14}$	46	1~3
13	81	4000	N230	$6 \times 10^{14}$	45	1~3
14	56	5000	N36	$8 \times 10^{14}$	47	1~3
15	39	6000	P107	$6 \times 10^{14}$	46	1~3
16	39	6000	P30	$6 \times 10^{14}$	46	1~3
17	65	5000	P1	$5 \times 10^{14}$	47	1~3
18	72	6000	N75	$5 \times 10^{14}$	46	1~3
19	47	6000	P11	$5 \times 10^{14}$	48	1~3
20	42	8000	P66	$5 \times 10^{14}$	47	1~3

【0032】ここで、主成分の組成範囲と構成を限定した理由は、実施例1と同様であるので説明は省略する。そして、主成分に対し、副成分としてのTa<sub>2</sub>O<sub>5</sub>を含有することにより、絶縁抵抗、絶縁破壊強度を大きくする効果を有しているが、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>の含有量が主成分100重量部に対し、0.1重量部未満はそれほど絶縁破壊強度が大きくなく、この発明の範囲から除外した。一方、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>の含有量が主成分に対し、10.0重量部を超えるとQ、絶縁抵抗が小さくなり、静電容量温度係数がマイナス側に大きくなり実用的でなくなる。

【0033】（実施例3）実施例1の原料の中で高純度のNb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>に代えて、高純度のV<sub>2</sub>O<sub>5</sub>粉末を用いて下記の（表5）に示す組成比になるように秤量し、以降の工程を実施例1と同様に処理して（表5）の試料番号21~30に示す組成比の誘電体磁器円板を得、実施例1と同様に処理して特性を測定した結果を試料番号21~30別に（表6）に示す。

【0034】

【表5】

試料 番号	主 成 分 (モル比、×100)			置換率 m	置換率 n	置換率 t	主成分中の Rの種類	主成分中の Meの種類	副成分V <sub>2</sub> O <sub>5</sub> の 含有率(重量%)	焼成温度 (℃)
	x	y	z							
21	15	50	35	0.01	0.001	0.01	Sm <sub>0.1</sub> Nd <sub>0.9</sub>	Ce	0.005	1330
22	16	61	23	0.05	0.005	0.02	Nd	Ce	0.100	1270
23	10	67	23	0.05	0.010	0.03	Sm <sub>0.1</sub> Nd <sub>0.9</sub>	Dy	0.100	1270
24	9	60	31	0.10	0.020	0.05	Sm	Dy	0.200	1270
25	2	58	40	0.10	0.050	0.07	Pr	Gd	0.200	1270
26	2	52	46	0.10	0.050	0.10	La	Gd	0.200	1280
27	12	55	33	0.01	0.050	0.12	Sm <sub>0.9</sub> Nd <sub>0.1</sub>	Ce <sub>0.1</sub> Dy <sub>0.9</sub>	0.200	1320
28	11	63	26	0.10	0.100	0.15	Nd	Ce	0.400	1270
29	9	56	35	0.50	0.100	0.18	Nd	Ce	1.000	1270
30	3	54	43	0.01	0.200	0.20	Pr <sub>0.1</sub> Sm <sub>0.9</sub>	Ce	0.600	1270

【0035】

【表6】

試料 番号	電 気 特 性					結晶粒径 (μm)
	誘電率	Q	温度係数 (ppm/℃)	絶縁抵抗 (Ω)	絶縁破壊強度 (kV/mm)	
21	42	3500	N235	3×10 <sup>14</sup>	40	1~3
22	70	3500	N75	4×10 <sup>14</sup>	39	1~3
23	78	4000	N218	4×10 <sup>14</sup>	40	1~3
24	54	5000	N30	4×10 <sup>14</sup>	41	1~3
25	37	5500	P117	4×10 <sup>14</sup>	42	1~3
26	38	5500	P38	3×10 <sup>14</sup>	42	1~3
27	63	5000	P7	3×10 <sup>14</sup>	43	1~3
28	71	6000	N77	3×10 <sup>14</sup>	42	1~3
29	45	6000	P18	3×10 <sup>14</sup>	45	1~3
30	40	7500	P73	3×10 <sup>14</sup>	42	1~3

【0036】ここで、主成分の組成範囲と構成を限定した理由は、実施例1と同様であるので説明は省略する。そして、主成分に対し、副成分としてのV<sub>2</sub>O<sub>5</sub>を含有することにより、絶縁抵抗、絶縁破壊強度を大きくする効果 40  
を有しているが、V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>の含有量が主成分100重量部に対し、0.005重量部未満はそれほど絶縁破壊強度が大きくなく、この発明の範囲から除外した。一方、V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>の含有量が主成分に対し、1.000重量部を超えるとQ、絶縁抵抗が小さくなり、実用的でなくなる。

【0037】(実施例4) 実施例1の原料の中で高純度のNb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>に代えて、高純度のNb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>およびV<sub>2</sub>O<sub>5</sub>粉末を用いて下記の(表7)に示す組成比になるように秤量し、以降の工程を実施例1と同様に処理して(表7)の試料番号31~40に示す組成比の誘電体磁器円板を得、実施例1と同様に処理して特性を測定した結果を試料番号31~40別に(表8)に示す。

【0038】

【表7】



11

12

試料 番号	主成分 (モル比、×100)			置換率 m	置換率 n	置換率 t	主成分中の Rの種類	主成分中の Meの種類	副成分の種類	副成分含量 (モル部)	焼成温度 (℃)
	x	y	z								
31	15	50	35	0.01	0.001	0.01	Sm, Nd	Ce	(Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.4</sub> (Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub> (V <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub>	0.001	1330
32	16	61	23	0.05	0.005	0.02	Nd	Ce	(Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.4</sub> (Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub> (V <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub>	0.001	1270
33	10	67	23	0.05	0.010	0.03	Sm, Nd	Dy	(Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.4</sub> (Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub> (V <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub>	0.001	1270
34	9	60	31	0.10	0.020	0.05	Sm	Dy	(Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.4</sub> (Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub> (V <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub>	0.002	1270
35	2	58	40	0.10	0.050	0.07	Pr	Gd	(Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.4</sub> (Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub> (V <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub>	0.002	1270
36	2	52	46	0.10	0.050	0.10	La	Gd	(Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.4</sub> (Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub> (V <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub>	0.002	1280
37	12	55	33	0.01	0.050	0.12	Sm, Nd	Ce, Dy	(Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.4</sub> (Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub> (V <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub>	0.002	1320
38	11	63	26	0.10	0.100	0.15	Nd	Ce	(Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.4</sub> (Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub> (V <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub>	0.004	1270
39	9	56	35	0.50	0.100	0.18	Nd	Ce	(Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.4</sub> (Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub> (V <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub>	0.010	1270
40	3	54	43	0.01	0.200	0.20	Pr, Sm	Ce	(Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.4</sub> (Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub> (V <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) <sub>0.3</sub>	0.006	1270

【0039】

【表8】

試料 番号	電気特性					結晶粒径 (μm)
	誘電率	Q	温度係数 (ppm/℃)	絶縁抵抗 (Ω)	絶縁破壊強度 (kV/mm)	
31	44	3500	N226	5×10 <sup>14</sup>	44	1~3
32	75	3500	N75	6×10 <sup>14</sup>	46	1~3
33	80	4500	N219	6×10 <sup>14</sup>	45	1~3
34	56	5500	N30	6×10 <sup>14</sup>	47	1~3
35	39	6500	P116	6×10 <sup>14</sup>	46	1~3
36	38	6500	P39	5×10 <sup>14</sup>	46	1~3
37	65	5500	P6	5×10 <sup>14</sup>	47	1~3
38	73	6000	N78	6×10 <sup>14</sup>	46	1~3
39	47	6500	P17	5×10 <sup>14</sup>	48	1~3
40	40	8500	P72	5×10 <sup>14</sup>	47	1~3

【0040】ここで、主成分の組成範囲と構成を限定した理由は、実施例1と同様であるので説明は省略する。そして、主成分に対し、副成分としてのNb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>を含有することにより、絶縁抵抗、絶縁破壊強度を大きくする効果を有しているが、Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>の含有量の合計が主成分100重量部に対し、0.001モル部未満はそれほど絶縁破壊強度が大きくなく、この発明の範囲から除外した。一方、Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>の含有量の合計が主成分に対し、0.010モル部を超えるとQ、絶縁抵抗が小さくなり、静電容量温度係数がマイナス側に大きくなり実用的でなくなる。また、Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>から選ばれる二種以上を含有することにより、Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>から選ばれる一種を含有するものに比べ、誘電率、Q、絶縁抵抗、絶縁破壊電圧が大きく、静

電容量温度係数を小さくすることができる。

【0041】なお、上記実施例における誘電体磁器の作製方法では、V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Pr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CeO<sub>2</sub>、Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、ZrO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>、MgOおよびBaCO<sub>3</sub>を使用した。この方法に限定されるものではなく、所望の組成比になるように、BaTiO<sub>3</sub>などの化合物、あるいは炭酸塩、水酸化物など空気中での加熱により、V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Pr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CeO<sub>2</sub>、Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、ZrO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>、MgOおよびBaOとなる化合物を使用しても実施例と同程度の特性を得ることができる。

【0042】また、主成分をあらかじめ仮焼し、副成分を添加しても実施例と同程度の特性を得ることができる。

13

【0043】さらに、誘電体磁器用として一般に使用される工業用原料の二酸化チタン、例えばチタン工業(株)製二酸化チタンKA-10C、古河鉱業(株)製二酸化チタンFA-55Wには最大0.45重量%のNb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>が含まれるが、これらの二酸化チタンを使用して実施例1の主成分の誘電体磁器を作製しても主成分100重量部に対して、Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>の含有量は最大で0.2重量部であり、この発明の範囲外であるが、工業用原料の二酸化チタン中のNb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>量を考慮し、不足分のNb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>を含有させることにより、実施例と同程度の特性を得ることができる。

【0044】また、上述の基本組成のほかに、SiO<sub>2</sub>、MnO<sub>2</sub>、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、ZnO、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>など、一般にフラックスと考えられている塩類、酸化物などを、特性を損なわない範囲で加えることもできる。

【0045】

【発明の効果】以上の実施例の説明からも明らかなように本発明は、一般式 $x[(BaO)_{(1-m)}(MgO)_m]$

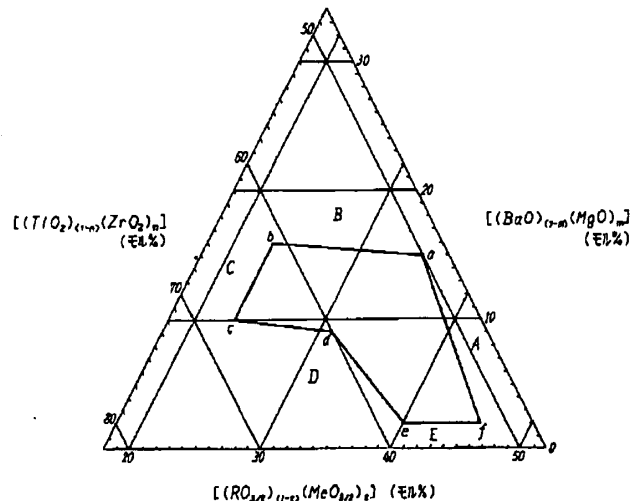
14

$\cdot y[(TiO_2)_{(1-n)}(ZrO_2)_n] \cdot z[(RO_{2/2})_{(1-t)}(MeO_{3/2})_t]$ で表され、式中RはLa、Pr、Nd、Smから選ばれる一種以上の希土類元素で、MeはLa、Pr、Nd、Smを除く希土類元素から選ばれる一種以上の希土類元素であり、 $m, n$ および $t$ の値が $0.01 \leq m \leq 0.50$ 、 $0.001 \leq n \leq 0.200$ および $0.01 \leq t \leq 0.20$ なる範囲にある組成を有し、かつ $x, y$ および $z$ はモル比を表し、 $x+y+z=1$ で $x, y, z$ の値が、所定の数値を示す $a, b, c, d, e, f$ で囲まれるモル比の範囲にある組成を主成分とし、ニオブ、タンタル、バナジウムもしくはそれらから選ばれる二種以上を副成分として含有させた誘電体磁器組成物の構成により、結晶粒径が小さく、誘電率、Q、絶縁抵抗、絶縁破壊電圧が大きく、静電容量温度係数が小さい誘電体磁器を得ることができるものである。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施例における誘電体磁器組成物の主成分の組成範囲を説明する三元図

【図1】



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☒ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image  
problems checked, please do not report these problems to  
the IFW Image Problem Mailbox.**

---